BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



Prioritätsbescheinigung DE 103 14 478.1 über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen:

103 14 478.1

Anmeldetag:

26. März 2003

Anmelder/Inhaber:

Agrolinz Melamin GmbH, Linz/AT

Bezeichnung:

Aminiotriazin-Kondensationsprodukt, Verwendung eines Aminiotriazin-Kondensationsproduktes und Verfahren zur Herstellung des Aminotriazin-

Kondensationsproduktes

IPC:

C 08 G 14/10, C 09 J 161/28, C 09 D 161/28, B 01 D 15/08

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der am 30. April 2003 eingereichten Unterlagen dieser Patentanmeldung, hinterlegt mit dem Prioritätsbeleg vom 19. April 2004 bei der World Intellectual Property Organization.

> München, den 16. April 2008 **Deutsches Patent- und Markenamt** Der Präsident Im Auftrag

> > Viells jurn



Beschreibung

Aminiotriazin-Kondensationsprodukt, Verwendung eines Aminiotriazin-Kondensationsproduktes und Verfahren zur Herstellung des Aminotriazin-Kondensationsproduktes

Die Erfindung betrifft ein Aminotriazin-Kondensationsprodukt gemäß Anspruch 1, deren Verwendung gemäß Anspruch 9 und ein Verfahren zu deren Herstellung gemäß Anspruch 10.

10

20

Aminiotriazin, insbesondere Melamin (I) ist ein sehr reaktionsträges Molekül und reagiert daher nur mit sehr reaktiven und daraus resultierend auch gefährlichen Substanzen (Halogene, Säurechloride, konzentrierte

15 Salpetersäure, Cyanate, Thiocyanate, Alkylsulfate; BASF, Technisches Merkblatt "Melamin", 1969, 1-18). Die Kondensation von Melamin mit Aldehyden ist ebenfalls bekannt, wobei die Umsetzung von Melamin mit Formaldehyd die einzig wirtschaftlich bedeutende ist. Hieraus entstehen Melamin-

Formaldehyd-Harze (Ullmann's Encyclopedia of Industrial

- Chemistry, (1987), Vol A2, 130-131). Nachteilig dabei ist, dass insbesondere Formaldehyd als gesundheitsgefährdend einzustufen ist (giftig, potentiell krebserregend) und, dass Formaldehyd eine sehr reaktive Verbindung darstellt, so dass dessen Reaktionen nur schwer steuerbar sind. Weiters ist die Derivatisierbarkeit der primären Umsetzungsprodukte von Formaldehyd mit Melamin (Methylolmelamine) zum Großteil auf die Veretherung beschränkt.
- 30 Es sind auch Reaktionen von Glyoxylsäure und Glyoxal mit Melamin bekannt.

Die DE 42 17 181 Al beschreibt die Verwendung der Kondensationsprodukte von Melamin und Glyoxylsäure und deren 35 Salze als Additiv für hydraulische Bindemittel und Baustoffe.

Aus der DE 41 40 899 A1 ist ein Verfahren zur Herstellung

wasserlöslicher Kondensationsprodukte aus einem Gemisch von Melamin, Glyoxylsäure und Glyoxal bekannt. Die erhaltenen Kondensationsprodukte finden als Gerbmittel Verwendung.

- Bei der Umsetzung von Melamin mit Glyoxylsäure besteht der Nachteil, dass ein Mol Glyoxylsäure ein Mol Melamin als Salz bindet und das überschüssige Melamin mit dem dann vorliegenden Melamin-Glyoxylsäuresalz reagieren kann.

 Alternativ kann ein Glyoxylsäuresalz anstatt Glyoxylsäure eingesetzt werden. In beiden Fällen besteht der große Nachteil, dass Carbonsäuresalze aufgrund der sehr geringen Reaktivität einer Derivatisierung nur mehr unter sehr großem Aufwand zugänglich sind. Die Reaktivitätsreihenfolge sieht wie folgt aus: Carbonsäurehalogenid > Carbonsäureanhydrid > 15 Carbonsäureester > Carbonsäure > Carbonsäureamid >
- Glyoxal polymerisiert sehr leicht zu Polyglyoxal und ist bei 20 Raumtemperatur eine stark reizende Substanz, die in wasserfreiem Lösungsmittel löslich ist. Die Derivatisierbarkeit der primären Umsetzungsprodukte ist, wie bei der Verwendung von Formaldehyd, auf die Veretherung beschränkt.

Carbonsäurenitril >> Carbonsäuresalz. Glyoxylsäure wird

ausschließlich als wässrige Lösung eingesetzt.

Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung besteht darin, ein insbesondere neuartiges, formaldehydfreies Aminotriazin-Kondensationsprodukt, insbesondere ein Melamin-Kondensationsprodukt bereitzustellen, dass durch eine Vielzahl von chemischen Transformationen einfach modifiziert werden kann.

Diese Aufgabe wird durch ein Aminotriazin-Kondensationsprodukt gelöst, das durch eine Kondensation mit 35 mindestens einem Oxocarbonsäurederivat herstellbar ist. Unter einem Oxocarbonsäurederivat (II) ist eine Verbindung zu verstehen, die sowohl mindestens eine Oxogruppe (-CO-) oder ein Derivat einer Oxogruppe (z.B. Hemiketal, Hemiacetal, Imin, Hemiaminal, Hemiamidal, sowie deren Aminoderivate) als auch mindestens ein Derivat einer Carboxylgruppe (z.B. Ester, Amid, Amidin, Iminoester, Nitril, Anhydrid, sowie die Iminoderivate des Anhydrids) im Molekül aufweist.

O (NH)
$$R_{1} \qquad R_{2}-R$$

$$R_{1} \qquad R_{2}-R$$

$$R_{1} \qquad R_{2}-R$$

Hierbei steht R für Ester -COOR₂, Amid -CONH₂, substituiertes

Amid -CONR₁R₂, Anhydrid -COOOCR₁, Nitril -CN, Iminoester
CNHOR₂, Amidin -CNHNH₂, substituiertes Amidin -CNHNR₁R₂,

Iminoderivate des Anhydrids -CNHOOCR₁, -CNHONHCR₁ und
CNHNHNHCR₁.

R₁ steht für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste und Wasserstoff H.

R₂ steht für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste.

R₃ steht für -OR₁, -NH₂, -NR₁R₂, -NR₁COR₁, -NR₁CNHR₁, -NR₁CN, -

 10^{-5} NR₁CNHNHCN.

Mit Vorteil ist das Oxocarbonsäurederivat ein Oxocarbonsäureester (III) oder ein Carbonsäureesterhemiketal (IV).

30

$$(III) \qquad O \qquad O \qquad (IV) \qquad R_3' O \qquad OH \qquad OR_2' \qquad R_1' \qquad OR_2'$$

R', R'₁, R'₂, R'₃ stehen für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste, wobei für R' und R'₁ Arylreste und Alkylreste und/oder substituierte Alkylreste ohne alpha-H bevorzugt sind (das zur Carbonylgruppe benachbarte C-Atom hat kein Wasserstoffatom gebunden).

Bevorzugt ist das Oxocarbonsäurederivat ein Aldehydcarbonsäurederivat, mit Vorteil ein Aldehydcarbonsäureester
(V) oder ein Carbonsäureesterhemiacetal (VI). R'1, R'2, R'3
stehen für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte
Alkyl- und/oder Arylreste, wobei für R'1 Arylreste und
Alkylreste und/oder substituierte Alkylreste ohne alpha-H
bevorzugt sind (das zur Carbonylgruppe benachbarte C-Atom hat
kein Wasserstoffatom gebunden).

15

20

30

35

Weiterhin mit Vorteil ist das Aldehydcarbonsäurederivat ein Glyoxylsäurester (VII) und/oder ein Glyoxylsäuresterhemiacetal (VIII).

$$(VII) \qquad O \qquad O \qquad (VIII) \qquad HO \qquad O \qquad O \qquad OR'$$

R', R' $_1$ und R' $_2$ stehen für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform ist das Aldehydcarbonsäurederivat Glyoxylsäuremethylester-methyl-hemiacetal (GMHA; 2-Hydroxy-2-methoxy-essigsäuremethylester) (IX).

GMHA ist eine bei Raumtemperatur flüssige Verbindung, die unter Normaldruck bei Temperaturen von ca. 122 bis 124 °C

unter Methanolabspaltung polymerisiert. Im Gegensatz zu Formaldehyd ist GMHA gesundheitlich weitaus weniger bedenklich. GMHA ist großtechnisch verfügbar. Es ist sowohl in Wasser, als auch in den gängigen organischen Lösungsmitteln löslich. Somit kann die erfindungsgemäße Reaktion auch in nichtwäßrigen Medien durchgeführt werden.

GMHA reagiert mit Melamin, und zwar mit oder ohne
Lösungsmittel und unerwarteter Weise sogar ohne Zusatz eines
10 Katalysators zu einer sirupartigen Lösung. Die entstehenden
Verbindungen sind analog zu den bekannten MelaminFormaldehyd-Kondensationsprodukten. Der Sirup kann durch
Erhitzen unter Verbrückung ausgehärtet werden.

Aufgrund seiner hohen Reaktivität erhält man bei Reaktionen mit Formaldehyd ein Gemisch aus den verschiedensten Produkten mit unterschiedlichem Substitutionsgrad. Im Vergleich dazu hat GMHA eine verminderte Reaktivität. Daraus ergibt sich eine bessere Steuerbarkeit der Reaktion.

20

Bei der Reaktion von Melamin mit GMHA wird zuerst unter Abspaltung von Methanol 2-Hydroxy-2-Melaminyl-Essigsäuremethylester (Methyloxycarbonyl-hydroxy-methin-melamin) (X) ausgebildet. Eine Mehrfachsubstitution am Melamin ist möglich, da jede NH_2 -Gruppe theoretisch zwei GMHA-Einheiten binden kann. Dabei ist anzumerken, dass die Zweitsubstitution einer NH_2 -Gruppe sterisch nicht begünstigt ist.

30
$$H_{2}N \longrightarrow NH_{2} \longrightarrow H_{3}CO \longrightarrow OCH_{3} \longrightarrow H_{2}N \longrightarrow NH_{2} \longrightarrow NH_{2$$

Reaktionen von Melamin mit der Esterfunktionalität sind aufgrund der geringen Reaktivität des Melamins nicht möglich.

Bei der Reaktion von GMHA und Melamin kommt es ebenfalls zur Bildung von 2-Methoxy-2-Melaminyl-Essigsäuremethylester (XI). Dieses entsteht allerdings nur als Nebenprodukt. 2-Methoxy-2-Melaminyl-Essigsäuremethylester (XI) kann aber leicht aus 2-Hydroxy-2-Melaminyl-Essigsäuremethylester (X) durch Umsetzung mit Methanol im Sauren hergestellt werden.

10

20

Analog zu Melamin-Formaldehydharzen treten miteinander verknüpfte Einheiten auf, die dann auch noch mehrfach substituiert sein können. Die einfachsten Vertreter sind im Folgenden abgebildet. Links sind die Einheiten über sogenannte "Methin-Brücken" miteinander verknüpft, rechts über sogenannte "Methin-oxy-Methin-Brücken":

35 "Methin"-Verbrückung

"Methin-oxy-Methin"-Verbrückung

Die primären Reaktionsprodukte der erfindungsgemäßen Reaktion sind im Gegensatz zu Methylolmelaminen sowohl in organischen Lösungsmitteln, als auch in Wasser löslich.

- Besonders hervorzuheben ist, dass die entstehenden Melamin-Kondensationsprodukte, neben der Veretherung/Umetherung analog zu den Melamin-Formaldehydharzen, durch eine große Bandbreite an möglichen Transformationen der Carboxylgruppe (z.B. Umesterung, Amididsierung,...) chemisch modifiziert
- werden können und somit eine große Anzahl von leicht zugänglichen Derivaten hergestellt werden kann.
- Die Herstellung der erfindungsgemäßen Kondensationsprodukte erfolgt durch die Umsetzung von Melamin mit dem
- Oxocarbonsäurederivat in einem einstufigen Syntheseschritt.

 Das Molverhältnis von Melamin zu dem Oxocarbonsäurederivat
 beträgt 1 : 1 bis 1 : 6, bevorzugt 1 : 1,5 bis 1 : 6.
- Die Umsetzung von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat kann ohne Lösungsmittel erfolgen. Um die Reaktion besser steuern zu können wird die Umsetzung bevorzugt in einem Lösungsmittel durchgeführt. Hierfür können inerte Lösungsmittel wie Dimethylsulfoxid, Dimethylformamid oder Dioxan verwendet werden. Insbesondere werden Alkohole verwendet. Auch Wasser ist als Lösungsmittel einsetzbar.

Bei der Umsetzung von Melamin mit GMHA ist es überraschender Weise möglich Methanol als Lösungsmittel zu verwenden. Überraschenderweise deshalb, da Methanol eigentlich die

- Rückreaktion fördern sollte (siehe oben).

 Methanol ist in diesem Fall auch deshalb vorteilhaft, da die Reaktionsprodukte in Methanol löslich sind.

 Bei leicht sauren Bedingungen mit einem pH-Wert zwischen 3
 - Bei leicht sauren Bedingungen mit einem pH-Wert zwischen 3 und 7 erfolgt im selben Schritt die Methylveretherung der
- 35 Hydroxygruppe (X reagiert zu XI).

 Die Feststoffgehalte in den Lösungen liegen zwischen 5 und
 95 m%, bevorzugt zwischen 25 und 75 m%.

Die primäre Umsetzung von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat kann in allen pH-Bereichen (0-14) erfolgen. Es muß kein Katalysator zugesetzt werden.

- Bevorzugt erfolgt die Umsetzung im pH-Bereich von 3 10. Im sauren Bereich treten neben der erwünschten primären Kondensation von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat verstärkt Folgekondensationsreaktionen auf, die aber im Vergleich zur Umsetzung von Melamin mit Formaldehyd nicht so schnell zu unlöslichen Kondensationsprodukten führen.
- Die primäre Umsetzung von Melamin mit dem
 Oxocarbonsäurederivat erfolgt in einem Temperaturbereich von
 40 bis 180 °C in einem Druckbereich von 0 bis 10 bar
 - 15 Überdruck. Die Reaktionszeit beträgt zwischen 5 und 120 Minuten. Während der Umsetzung löst sich das Melamin vollständig auf. Bei höheren Temperaturen verläuft die Reaktion schneller, wobei aber auch die Folgekondensationsreaktionen schneller ablaufen.

20

Die primären Umsetzungsprodukte können auch durch Umsetzung der Oxocarbonsäure mit Melamin in Alkohol hergestellt werden, wobei das Carbonsäureesterhemiacetal insitu in der Reaktionsmischung hergestellt wird.

- In einer vorteilhaften Ausgestaltung des Verfahrens findet nach der Kondensation eine Transformation der -COOR-Gruppe statt, insbesondere eine Umesterung und/oder Amidisierung.
- Die Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung der erfindungsgemäßen Kondensationsprodukte kann in einem Schritt mit der primären Kondensation von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat durchgeführt werden. Hierbei wird die Reaktion im Sauren durchgeführt und ein Alkohol als Lösungsmittel verwendet,
- 35 der dann zugleich zur Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung dient. Falls der Alkohol zu hoch siedet, wird der Alkohol,

im entsprechenden Molverhältnis, in einem inerten Lösungsmittel gelöst zugegeben.

Die Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung der erfindungsgemäßen
Kondensationsprodukte wird bevorzugt in einem zweiten
Reaktionsschritt durchgeführt.

Die Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung wird im Sauren durchgeführt, bevorzugt im pH-Bereich von 3 - 6,5. Die

Reaktionstemperaturen bewegen sich im Bereich von 40 bis 180 °C und in einem Druckbereich von -1 bis 10 bar Überdruck.

Die Reaktionszeit beträgt zwischen 5 und 120 Minuten.

Falls ein Alkohol zur Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung verwendet wird, der höher siedet als das Abspaltungsprodukt,

wird dieses bei der Umsetzung abdestilliert.

Folgende Alkohole sind typische Reaktionspartner:
Aliphatische und aromatische Alkohole, Diole und Polyole;
Poly-, Oligoethylenglycol-Derivate (Simulsole); (Oligo) Hydroxycarbonsäurederivate (z.B.: Caprolacton-derivate);
Poly-, Oligoesterpolyole; Poly-, Oligolactide; Zucker(derivate); Stärke(-derivate) und Cellulosederivate.

Die Amidisierung der erfindungsgemäßen Kondensationsprodukte erfolgt in einem zweiten Schritt nach der primären Kondensation von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat durch Zugabe von Ammoniak- bzw. Aminlösung.

Die Amidisierung wird mit einem 2-3 fachen molaren Überschuß 30 bezogen auf die Carboxylgruppe an Ammoniak/Amin durchgeführt. Die Reaktionstemperaturen bewegen sich im Bereich von 20 bis 150 °C und in einem Druckbereich von 0 bis 10 bar Überdruck. Die Reaktionszeit beträgt zwischen 30 und 300 Minuten.

35

Zur Aufarbeitung können die entstandenen Lösungen mittels Destillation aufkonzentriert bzw. lösungsmittelfrei gemacht werden. Dies erfolgt entweder in einem Rührreaktor mit Destillationsaufsatz, in Dünnschichtverdampfern oder Filmtrudern. Beim Aufkonzentrieren steigt die Viskosität stark an.

5

10

Für besondere Einsatzzwecke können die aufkonzentrierten bzw. lösungsmittelfreien Produkte in einem Extruder unter Temperaturerhöhung bis auf 250 °C und Abziehen weiterer Kondensationsprodukte weiterkondensiert werden. Die so erhaltene Schmelze wird nach dem Austritt aus dem Extruder abgekühlt und beim Abkühlen konfektioniert.

Feste Produkte werden durch Filtration abgetrennt und mittels Vakuum oder Trockenstickstoff unter

15 Temperaturerhöhung getrocknet.

In einer weiteren Ausführungsform der Erfindung ist neben mindestens einem Oxocarbonsäurederivat auch Formaldehyd und/oder Harnstoff in der Reaktionsmischung vorhanden.

20

Dies ermöglicht es, Melaminderivate mit einer großen Bandbreite an Strukturen und physikalischen Eigenschaften herzustellen.

Die erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte werden zur Herstellung von Harzen, Hybridharzen, Klebstoffen, Härtern (Vernetzern), Lacken, Chromatographiematerialien und Materialien mit flammhemmenden Eigenschaften verwendet und als organische Synthesebausteine (für Spezialchemikalien,

30 Pharmaka) und Polymermodifikatoren eingesetzt.

Über die Esterfunktionalität von Derivaten der erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte ist der Einbau in eine Vielzahl von Polymeren möglich. Z.B. durch

Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung von (X) mit Diolen oder
Polyolen (wie Ethylenglycol, Polyethylenglycolderivaten etc.)

ist eine Einkondensierung solcher Derivate bei der Polyesterherstellung möglich.

- Eine weitere Anwendung der erfindungsgemäßen MelaminKondensationsprodukte besteht in der Mischung mit
 modifizierten Melamin-Formaldehydharzen, mit Epoxidharzen
 und ungesättigten Polyesterharzen zur Herstellung von
 Hybridharzsystemen.
- Durch die Möglichkeit wasserfreie Produkte der erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte herstellen zu können kann problemlos eine Umsetzung mit Isocyanaten zu Polyurethanen erfolgen und dadurch kann Melamin reaktiv in das PU-Netzwerk eingebaut werden. Dies ist mit
 - 15 wasserhaltigen Produkten nicht möglich, da die Isocyanatgruppe mit Wasser sofort unter Kohlendioxid-Abspaltung hydrolysiert wird.
- Ein weiteres Einsatzgebiet vor allem für die diol- bzw.

 20 polyol-modifizierten Melamin-Kondensationsprodukte sind intumeszierende Flammhemmersysteme, da in diesen Verbindungsklassen sowohl Treibmittel (Melamin) als auch Kohlenstoffquelle (C2-Grundgerüst, Polyol) vorliegen.
- Die Kondensationsprodukte können durch Temperatureinwirkung weiterkondensiert und schlußendlich ausgehärtet werden. Die Aushärtung kann in allen pH-Bereichen erfolgen. Bevorzugt werden die Produkte im Sauren pH 3 6,5 ausgehärtete.
 - Die Reaktionsprodukte der erfindungsgemäßen Reaktion sind überwiegend chirale Verbindungen, die selbst zu Polymeren aufgebaut werden können oder in andere Polymere (z.B.: Polyester) eingebaut werden können. Eine Ausnahme davon stellen lediglich mit Methin-Brücken verbundene, idente
 - Reaktionsprodukte dar. Solche chirale Polymere sind interessant für die chirale Analytik, wobei diese Polymere als chirale Selektoren verwendet werden, die zur Auftrennung

von racemischen Gemischen eingesetzt werden. Diese Auftrennung wird auch in präparativem Maßstab durchgeführt.

5 Beispiele

30

35

Beispiel 1 - Umsetzung von GMHA mit Melamin in Methanol

- 126 g Melamin (1 Mol), 360 g GMHA (3 Mol) und 250 g Methanol
 10 (7,8 Mol) werden in einem Kolben mit Rührer und
 Rückflußkühler vorgelegt. Der pH-Wert beträgt ca. 3,5. Die
 Suspension wird unter Rühren 60 Minuten auf Rückfluß
 erhitzt. Dabei entsteht eine klare Lösung der
 erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte mit ca. 53
 15 m% Feststoffgehalt. Nach dem Abdampfen des Lösungsmittels im
 Vakuum bleibt eine bei Raumtemperatur hochviskose Masse
 übrig, die in Alkoholen, Wasser, Aceton und Estern löslich
 ist.
- 20 Beispiel 2 Umsetzung von GMHA mit Melamin in Butanol

126 g Melamin (1 Mol), 360 g GMHA (3 Mol) und 580 g Butanol (7,8 Mol) werden in einem Kolben mit Rührer und Rückflußkühler vorgelegt. Der pH-Wert beträgt ca. 4,5. Die Suspension wird unter Rühren 60 Minuten auf Rückfluß erhitzt. Dabei entsteht eine klare Lösung der erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte mit ca. 50 m% Feststoffgehalt. Nach dem Abdampfen des Lösungsmittels im Vakuum bleibt eine bei Raumtemperatur hochviskose Masse übrig, die in Butanol, Aceton und Estern löslich ist (unlöslich in Methanol, Wasser).

Beispiel 3 - Umsetzung des Reaktionsprodukts aus Beispiel 2 mit Simulsol BPLE (Bisphenol A modifiziertes PEG)

300 g lösungsmittelfreies Reaktionsprodukt aus Beispiel 2 wird in 180 g Simulsol BPLE (2 OH-Gruppen pro Molekül, M=490 g/mol) bei 60 °C unter Rühren gelöst. Der pH-Wert beträgt ca. 5. Die Reaktionsmischung wird auf ca. 120 °C geheizt und unter Vakuum werden ca. 42 g Butanol abdestilliert. Die Reaktionsmischung wird dabei sehr viskos. Es wurde aufgrund der Stöchiometrie ein Fünftel aller Ether- bzw. Estergruppen mit Simulsol umgeethert/umgeestert. Das Reaktionsprodukt ist bei Raumtemperatur gummiartig-viskos und ist in Aceton löslich.

10 Beispiel 4 - Amidisierung des Reaktionsprodukts aus Beispiel 1 mit Ammoniak (Amidisierung)

130 g lösungsmittelfreies Reaktionsprodukt aus Beispiel 1 wird in 200 ml 25 m% Ammoniak (2,7 Mol) bei 40 °C gelöst,

wobei nach kurzer Zeit sofort ein weißer Niederschlag ausfällt. Es wird bei ca. 25-30 °C noch 2 Stunden gerührt. Der Niederschlag wird abfiltriert und bei 60 °C im Vakuum getrocknet. Ausbeute ca. 105 g Produkt (91 %).



Patentansprüche

- Aminotriazin-Kondensationsprodukt, insbesondere Melamin-Kondensationsprodukt,
- herstellbar durch,
 die Reaktion eines Aminotriazins, insbesondere Melamin
 (I) mit mindestens einem Oxocarbonsäurederivat.

(I) H₂N NH₂NNNNNH₂

10

- Aminotriazin-Kondensationsprodukt nach Anspruch 1,
 dadurch gekennzeichnet,
 dass mindestens ein Oxocarbonsäurederivat ein Ester und/oder Hemiacetal ist.
- Aminotriazin-Kondensationsprodukt nach Anspruch 1 oder 2,
 dadurch gekennzeichnet,
 dass mindestens ein Oxocarbonsäurederivat ein
 Glyoxylsäurester (II) und/oder ein
 Glyoxylsäuresterhemiacetal (III) ist.



wobei:

R'', R''1, R''2: Alkyl, Aryl

- 4. Aminotriazin-Kondensationsprodukt nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,
- dass das Oxocarbonsäurederivat Glyoxylsäuremethylster-

methylhemiacetal (GMHA; 2-Hydroxy-2-methoxy-essigsäuremethylester) (IV) ist.

- Aminotriazin -Kondensationsprodukt nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,
- dass das Kondensationsprodukt sowohl in organischen Lösungsmitteln, als auch in Wasser löslich ist.
- 6. Aminotriazin -Kondensationsprodukt nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche,
 - dadurch gekennzeichnet,
 dass neben mindestens einem Oxocarbonsäurederivat (II,
 III, IV) auch Formaldehyd und/oder Harnstoff in der
 Reaktionsmischung vorhanden sind.
 - 7. Aminotriazin -Kondensationsprodukt nach mindestens einem vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktion in einem Lösungsmittel, insbesondere Wasser, oder einem organischen Lösungsmittel abläuft.
- 8. Aminotriazin -Kondensationsprodukt nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktion in methanolischer Lösung, abläuft.
 - Verwendung von Aminotriazin-Kondensationsprodukten, insbesondere Melamin-Kondensationsprodukten nach mindestens einem der vorangehenden Ansprüche, gekennzeichnet durch die Herstellung von Harzen, Klebstoffen, Härtern, Lacken, Chromatographiematerialien, organischen Synthesebausteinen, Lackzusatz-Vernetzern und Materialien mit flammhemmenden Eigenschaften sowie Gewirken.

- 10. Verfahren zur Herstellung von Aminotriazin -Kondensationsprodukten nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 8,
- dadurch gekennzeichnet, dass ein Aminotriazin, insbesondere Melamin in flüssiger Phase mit mindestens einem Oxocarbonsäurederivat vermischt wird.
- 11. Verfahren nach Anspruch 10,
 10 dadurch gekennzeichnet, dass
 nach der Kondensation eine Transformation der -COORGruppe stattfindet, insbesondere eine Umetherung,
 Umesterung und/oder Amidierung.
- 15 12. Verfahren nach Anspruch 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, dass das Kondensationsprodukt durch Erhitzen ausgehärtet wird.
- 13. Verfahren nach mindestens einem der vorhergehenden 20 Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Kondensationsprodukt durch Reaktion mit der Esterfunktionalität in andere Polymere eingebaut wird.



Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft ein Aminotriazin-Kondensationsprodukt, insbesondere ein Melamin-Kondensationsprodukt, das durch Reaktion von einem Aminotriazian, insbesondre Melamin mit einem Oxocarbonsäurederivat hergestellt wird. Weiterhin betrifft die Erfindung sowohl die Verwendung, als auch ein Verfahren zur Herstellung dieses Aminiotriazin-

10 Kondensationsproduktes.

Damit wird ein formaldhydfreies oder formaldehydarmes und damit gesundheitlich besser verträgliches Aminotriazin-Kondensationsprodukt bereitgestellt, dessen Reaktion gut

15 steuerbar ist.



UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

I, Neil Thomas SIMPKIN BA,

Deputy Managing Director of RWS Group Ltd UK Translation Division, of Europa House, Marsham Way, Gerrards Cross, Buckinghamshire, England declare;

- 1. That I am a citizen of the United Kingdom of Great Britain and Northern Ireland.
- 2. That the translator responsible for the attached translation is well acquainted with the German and English languages.
- 3. That the attached is, to the best of RWS Group Ltd knowledge and belief, a true translation into the English language of the accompanying copy of the specification filed with the application for a patent in Germany on 26 March 2003 under the number DE 103 4 478.1 and the official certificate attached thereto.
- 4. That I believe that all statements made herein of my own knowledge are true and that all statements made on information and belief are true; and further that these statements were made with the knowledge that willful false statements and the like so made are punishable by fine or imprisonment, or both, under Section 1001 of Title 18 of the United States Code and that such willful false statements may jeopardize the validity of the patent application in the United States of America or any patent issuing thereon.

NS Sin

For and on behalf of RWS Group Ltd
The 1st day of May 2008

FEDERAL REPUBLIC OF GERMANY



Priority Certificate DE 103 14 478.1 for the filing of a Patent Application

File Reference:

103 14 478.1

Filing date:

26 March 2003

Applicant/Proprietor:

Agrolinz Melamin GmbH, Linz/AT

Title:

Aminotriazine condensation product, use of an aminotriazine condensation product and method for the production of the

aminotriazine condensation product

IPC:

C 08 G 14/10, C 09 J 161/28,

C 09 D 161/28, B 01 D 15/08

The attached documents are a correct and accurate reproduction of the parts of the submission for this Patent Application filed on 30 April 2003, filed with the World Intellectual Property Organization with the priority document of 19 April 2004.

Munich, 16 April 2008

German Patent and Trademark Office

The President

pp

[seal of the German Patent and Trademark Office]

[signature]. Niggebaum

Description

10

35

Aminotriazine condensation product, use of an aminotriazine condensation product and method for the production of the aminotriazine condensation product

The invention relates to an aminotriazine condensation product according to claim 1, to the use thereof according to claim 9 and to a method for producing it according to claim 10.

Aminotriazine, in particular melamine (I) is a very unreactive molecule and therefore only reacts with very reactive and consequently also hazardous substances 15 (halogens, acid chlorides, concentrated nitric acid, cyanates, thiocyanates, alkyl sulfates; BASF, Technical Data Sheet for Melamine, 1969, 1-18). The condensation of melamine with aldehydes is likewise known, the reaction of melamine with formaldehyde being the only 20 one of economic importance. From this form melamineformaldehyde resins (Ullmann's Encyclopedia Industrial Chemistry; (1987), Vol. A2, 130-131). this connection, it is disadvantageous that formaldehyde in particular is classified as being injurious to health (toxic, potentially carcinogenic) and that 25 formaldehyde is a very reactive compound, meaning that its reactions can only be controlled with difficulty. Furthermore, the derivatizability of the primary reaction products of formaldehyde with melamine (methylol-30 melamine) is for the most part limited etherification.

Reactions of glyoxylic acid and glyoxal with melamine are also known.

DE 42 17 181 A1 describes the use of the condensation products of melamine and glyoxylic acid and salts thereof as additive for hydraulic binders and building

materials.

25

35

DE 41 40 899 Al discloses a method for producing water-soluble condensation products from a mixture of melamine, glyoxylic acid and glyoxal. The condensation products obtained are used as tanning agents.

When reacting melamine with glyoxylic acid there is the disadvantage that one mol of glyoxylic acid binds one 10 mol of melamine as salt and the excess melamine can react with the then present melamine-glyoxylic acid salt. Alternatively, a glyoxylic acid salt can be used instead of glyoxylic acid. In both cases, there is the great disadvantage that carboxylic acid salts are only 15 accessible to a derivatization with very expenditure on account of the very low reactivity. The reactivity order looks as follows: carboxylic acid halide > carboxylic anhydride > carboxylic ester > > carboxamide > carbonitrile >> carboxylic acid carboxylic acid salt. Glyoxylic acid is exclusively 20 used as aqueous solution.

Glyoxal polymerizes very readily to give polyglyoxal and, at room temperature, is a highly irritative substance which is soluble in anhydrous solvents. The derivatizability of the primary reaction products is, as is the case with the use of formaldehyde, limited to etherification.

One object of the present invention is to provide an in particular new type of formaldehyde-free aminotriazine condensation product, in particular a melamine condensation product which can be modified simply by a large number of chemical transformations.

This object is achieved by an aminotriazine condensation product which can be produced by a condensation with at least one oxocarboxylic acid derivative.

An oxocarboxylic acid derivative (II) is understood as meaning a compound which has not only at least one oxo group (-CO-) or a derivative of an oxo group(e.g. hemiketal, hemiacetal, imine, hemiaminal, hemiamidal, and amino derivatives thereof) but also at least one derivative of a carboxyl group (e.g. ester, amide, amidine, imino ester, nitrile, anhydride, and also the imino derivatives of the anhydride) in the molecule.

10

15

(II)
$$R_1$$
 R_2 R_2 R_3 R_3 R_2 R_3 R_2 R_3

In this case R represents ester $-\text{COOR}_2$, amide $-\text{CONH}_2$, substituted amide $-\text{CONR}_1\text{R}_2$, anhydride $-\text{COOOCR}_1$, nitrile -CN, imino ester $-\text{CNHOR}_2$, amidine $-\text{CNHNH}_2$, substituted amidine $-\text{CNHNR}_1\text{R}_2$, imino derivatives of the anhydride $-\text{CNHOOCR}_1$, $-\text{CNHONHCR}_1$ and $-\text{CNHNHNHCR}_1$.

R₁ represents alkyl and/or aryl radicals and/or substituted alkyl and/or aryl radicals and hydrogen H.

20 R₂ represents alkyl and/or aryl radicals and/or substituted alkyl and/or aryl radicals.

R₃ represents -OR₁, -NH₂, -NR₁R₂, -NR₁COR₁ -NR₁CNHR₁, -NR₁CN, -NR₁CNHNHCN.

25 The oxocarboxylic acid derivative is advantageously an oxocarboxylic ester (III) or a carboxylic ester hemiketal (IV).

(III)
$$R_1^{\prime} \cap OR_2^{\prime}$$
 (IV) $R_3^{\prime} \cap OH \cap OR_2^{\prime}$

30 R', R' $_1$, R' $_2$, and R' $_3$ represent alkyl and/or aryl radicals and/or substituted alkyl and/or aryl radicals,

the R' and R' $_1$ aryl radicals and alkyl radicals and/or substituted alkyl radicals preferably having no alpha-H, (the C atom adjacent to the carbonyl group has no bonded hydrogen atom).

. 5

10

The oxocarboxylic acid derivative is preferably an aldehydecarboxylic acid derivative, advantageously an aldehydecarboxylic ester (V) or a carboxylic ester hemiacetal (VI). R'_1 , R'_2 , R'_3 represent alkyl and/or aryl radicals and/or substituted alkyl and/or aryl radicals, the R'_1 aryl radicals and alkyl radicals and/or substituted alkyl radicals and/or substituted alkyl radicals preferably having no alpha-H (the C atom adjacent to the carbonyl group has no bonded hydrogen atom).

$$(V) \qquad \qquad (VI) \qquad (VI) \qquad (P'_3O) \qquad OH \qquad OR'_2$$

15

The aldehydecarboxylic acid derivative is also advantageously a glyoxylic ester (VII) and/or a glyoxylic ester hemiacetal (VIII).

$$(VII) \qquad O \qquad O \qquad (VIII) \qquad HO \qquad O \qquad OR_2^1$$

20

R', R' $_1$ and R' $_2$ represent alkyl and/or aryl radicals and/or substituted alkyl and/or aryl radicals.

In a particularly preferred embodiment, the aldehyde-25 carboxylic acid derivative is glyoxylic methyl ester methyl hemiacetal (GMHA; methyl 2-hydroxy-2-methoxyacetate) (IX).

GMHA is a compound which is liquid at room temperature and which, under atmospheric pressure at temperatures

of from about 122 to 124°C, polymerizes with the elimination of methanol. In contrast to formaldehyde, GMHA is much less risky in terms of health. GMHA is available on an industrial scale. It is soluble both in water and also in the customary organic solvents. The reaction according to the invention can thus also be carried out in nonageuous media.

GMHA reacts with melamine, with or without solvents and, unexpectedly, even without the addition of a catalyst to give a syrup-like solution. The resulting compounds are analogous to the known melamine-formaldehyde condensation products. The syrup can be cured by heating with bridging.

15

20

25

10

On account of its high reactivity, reactions with formaldehyde produce a mixture of very different products with a varying degree of substitution. By comparison, GMHA has a reduced reactivity. This results in a better controllability of the reaction.

In the case of the reaction of melamine with GMHA, 2-hydroxy-2-melaminyl acetic methyl ester (methyloxycarbonylhydroxymethine melamine) (X) is first formed with the elimination of methanol. Multiple substitution on the melamine is possible since each NH_2 group can theoretically bond two GMHA units. Here, it should be noted that the second substitution of an NH_2 group is sterically not favored.

30

$$H_2N$$
 NH_2
 H_3CO
 OCH_3
 $-H_3COH$
 NH_2
 NH

Reactions of melamine with the ester functionality are not possible on account of the low reactivity of the melamine.

The reaction of GMHA and melamine likewise leads to the formation of 2-methoxy-2-melaminyl acetic methyl ester (XI). However, this is generally only produced as a byproduct. However, 2-methoxy-2-melaminyl acetic methyl ester (XI) can easily be prepared from 2-hydroxy-2-melaminyl acetic methyl ester (X) by reaction with methanol under acidic conditions.

$$H_2N$$
 N
 H
 H
 OCH_3
 H_3COH
 H^+
 H_2N
 N
 H
 OCH_3
 H
 OCH_3
 H
 OCH_3
 OCH

Analogously to melamine-formaldehyde resins, units joined together arise which then also may be polysubstituted as well. The simplest representatives are depicted below. On the left, the units are linked to one another via so-called "methine bridges", on the right, via so-called "methine-oxy-methine bridges":

"methine" bridge

"methine-oxy-methine" bridge

- In contrast to methylol melamines, the primary reaction products of the reaction according to the invention are soluble both in organic solvents and also in water.
- It is to be emphasized in particular that the resulting
 melamine condensation products can be chemically
 modified besides the esterification/transesterification
 analogously to the melamine-formaldehyde resins, by a

large range of possible transformations of the carboxyl group (e.g. transesterification, amidation, ...) and thus a large number of readily accessible derivatives can be prepared.

5

10

The condensation products according to the invention are prepared by the reaction of melamine with the oxocarboxylic acid derivative, in a single-stage synthesis. The molar ratio of melamine to the oxocarboxylic acid derivative is about 1:1 to 1:6, preferably 1:1.5 to 1:6.

The reaction of melamine with the oxocarboxylic acid derivative can take place without solvent. In order to be able to better control the reaction the reaction is preferably carried out in a solvent. For this purpose, it is possible to use inert solvents, such as dimethyl sulfoxide, dimethylformamide or dioxane. In particular, alcohols are used. Water can also be used as solvent.

20

In the reaction of melamine with GMHA, it is surprisingly possible to use methanol as solvent. Surprising since methanol should actually promote the reverse reaction (see above).

25 Methanol is also advantageous in this case since the reaction products are soluble in methanol.

Under slightly acidic conditions with a pH between 3 and 7, the methyl etherification of the hydroxy group (X reacts to give XI) takes place in the same step.

The solids contents in the solutions are between 5 and 95m%, preferably between 25 and 75m%.

The primary reaction of melamine with the oxocarboxylic acid derivative can take place in all pH ranges (0-14).

No catalyst must be added. Preferably, the reaction takes place in the pH range 3-10. In the acidic range, besides the desired primary condensation of melamine with the oxocarboxylic acid derivative, secondary

condensation reactions also occur to an increased extent but, in comparison to the reaction of melamine with formaldehyde, do not lead so quickly to insoluble condensation products.

5

10

The primary reaction of melamine with the oxocarboxylic acid derivative takes place in a temperature range from 40 to 180°C in a pressure range from 0 to 10 bar superatmospheric pressure. The reaction time is between 5 and 120 minutes. During the reaction, the melamine dissolves completely. At higher temperatures, the reaction proceeds more quickly, but the secondary condensation reactions also proceed more quickly.

- The primary reaction products can also be prepared by reacting the oxocarboxylic acid with melamine in alcohol, where the carboxylic ester hemiacetal is prepared in situ in the reaction mixture.
- 20 In one advantageous embodiment of the method, a transformation of the -COOR group, in particular a transesterification and/or amidation, takes place after the condensation.
- 25 The etherification or transetherification/esterification or transesterification of the condensation products according to the invention can be carried out in one step with the primary condensation of melamine with the oxocarboxylic acid derivative.
- 30 Here, the reaction is carried out under acidic conditions and an alcohol is used as solvent which then at the same time serves for the etherification or transetherification/esterification or transesterification. If the alcohol boils too high, the alcohol is added in dissolved form in an inert solvent in the
- appropriate molar ratio.

The etherification or transetherification/esterification or transesterification of the condensation products according to the invention is preferably carried out in a second reaction step.

5

10

. 15

The etherification or transetherification/esterification or transesterification is carried out under acidic conditions, preferably in the pH range 3-6.5. The reaction temperatures vary in the range from 40 to 180°C and in a pressure range from -1 to 10 bar superatmospheric pressure. The reaction time is between 5 and 120 minutes. If an alcohol is used for the etherification, transetherification/esterification, transesterification which boils higher than the elimination product, it is distilled off during the reaction.

The following alcohols are typical reactants: aliphatic and aromatic alcohols, diols and polyols; poly-, oligoethylene glycol derivatives (Simulsols); (oligo)hydroxycarboxylic acid derivatives (e.g.: caprolactone derivatives); poly-, oligoester polyols; poly-, oligolactides; sugar (derivatives); starch (derivatives) and cellulose derivatives.

25

30

The amidation of the condensation products according to the invention takes place in a second step after the primary condensation of melamine with the oxocarboxylic acid derivative by adding ammonia solution or amine solution.

The amidation is carried out with a 2-3 fold molar excess, based on the carboxyl group, of ammonia/amine. The reaction temperatures vary in the range from 20 to 150°C and in a pressure range from 0 to 10 bar superatmospheric pressure. The reaction time is between 30 and 300 minutes.

- 10 -

For work-up, the resulting solutions can be concentrated or made solvent-free by means of distillation. This takes place either in a stirred reactor with distillation attachment, in thin-film evaporators or film truders. The viscosity increases markedly during concentration.

For particular intended uses, the concentrated or solvent-free products can be further condensed in an extruder while increasing the temperature to 250°C and drawing off further condensation products. The melt obtained in this way is cooled after exiting the extruder and confectioned during cooling.

15 Solid products are separated off by filtration and dried by means of reduced pressure or dry nitrogen while increasing the temperature.

In a further embodiment of the invention, besides at least one oxocarboxylic acid derivative, also formaldehyde and/or urea is present in the reaction mixture.

This makes it possible to prepare melamine derivatives 25 with a large range of structures and physical properties.

The melamine condensation products according to the invention are used for producing resins, hybrid resins, adhesives, hardeners (crosslinkers), coatings, chromatography materials and materials with flameresistant properties and used as organic synthesis building blocks (for specialty chemicals and pharmaceuticals) and polymer modifiers.

35

Via the ester functionality of derivatives of the melamine condensation products according to the invention, the incorporation into a large number of

- 11 - AMG169

polymers is possible. For example, through etherification or transetherification/esterification or transesterification of (X) with diols or polyols, (such as ethylene glycol, polyethylene glycol derivatives etc.) incorporation of such derivatives by condensation during the polyester preparation is possible.

A further application of the melamine condensation products according to the invention consists in the mixing with modified melamine-formaldehyde resins, with epoxy resins and unsaturated polyester resins for producing hybrid resin systems.

By virtue of the possibility of being able to produce 15 products of the melamine condensation products according to the invention, a reaction with isocyanates to give polyurethanes can take place without problems and, as a result, melamine can be reactively incorporated into the PU network. This is . 20 with possible hydrous products, since isocyanate group is immediately hydrolyzed with water with elimination of carbon dioxide.

A further field of use primarily for the diol- or polyol-modified melamine condensation products are intumescent flame retardant systems, since in these classes of compounds, both propellants (melamine) and carbon sources (C2-basic backbone, polyol) are present.

30 The condensation products can be further condensed and ultimately cured through the effect of temperature. The curing can take place in all pH ranges. Preferably, the products are cured in the acidic pH 3-6.5.

35

5

10

The reaction products of the reaction according to the invention are primarily chiral compounds which can themselves be constructed to give polymers or can be

incorporated into other polymers (e.g. polyesters) One exception to this is identical reaction products joined merely with methine bridges. Such chiral polymers are interesting for chiral analysis, where these polymers are used as chiral selectors which are used for separating racemic mixtures. This separation is also carried out on a preparative scale.

Examples

10

Example 1 - Reaction of GMHA with melamine in methanol

126 g of melamine (1 mol), 360 g of GMHA (3 mol) and 250 g of methanol (7.8 mol) are initially introduced into a flask fitted with stirrer and reflux condenser. The pH is about 3.5. The suspension is heated to reflux with stirring for 60 minutes. During this, a clear solution of the melamine condensation products according to the invention is formed with a solids content of about 53m%. After the solvent has been evaporated off under reduced pressure, a mass remains which is highly viscous at room temperature and which is soluble in alcohols, water, acetone and esters.

25 Example 2 - Reaction of GMHA with melamine in butanol

126 g of melamine (1 mol), 360 g of GMHA (3 mol) and 580 g of butanol (7.8 mol) are initially introduced into a flask fitted with stirrer and reflux condenser. The pH is about 4.5. The suspension is heated to reflux with stirring for 60 minutes. During this, a clear solution of the melamine condensation products according to the invention is formed with a solids content of about 50m%. After the solvent has been evaporated off under reduced pressure, a mass remains which is highly viscous at room temperature and which is soluble in butanol, acetone and esters (insoluble in methanol, water).

Example 3 - Reaction of the reaction product from Example 2 with simulsol BPLE (bisphenol A-modified PEG)

- 300 g of solvent-free reaction product from Example 2 are dissolved with stirring in 180 g of simulsol BPLE (2 OH groups per molecule, M = 490 g/mol) at $60 \,^{\circ}\text{C}$. The pH is about 5. The reaction mixture is heated to about 120°C and about 42 g of butanol are distilled off under 10 reduced pressure. During this, the reaction mixture becomes very viscous. On account of the stoichiometry, fifth of all ether and ester groups transetherified/transesterified with simulsol. product has gum-like viscosity room 15 temperature and is soluble in acetone.
 - Example 4 Amidation of the reaction product from Example 1 with ammonia (amidation)
- 130 g of solvent-free reaction product from Example 1 are dissolved in 200 ml of 25m% ammonia (2.7 mol) at 40°C, with a white precipitate immediately precipitating out after a short time. It is stirred for a further 2 hours at about 25-30°C. The precipitate is filtered off and dried at 60°C under reduced pressure. Yield about 105 g of product (91%).

We claim:

1. An aminotriazine condensation product, in particular melamine condensation product,

producible by the reaction of aminotriazine, in particular melamine (I), with at least one oxocarboxylic acid derivative.

10

. 5

2. The aminotriazine condensation product as claimed in claim 1, characterized in that at least one oxocarboxylic acid derivative is an ester and/or hemiacetal.

15

20

3. The aminotriazine condensation product as claimed in claim 1 or 2,

characterized in that

at least one oxocarboxylic acid derivative is a glyoxylic ester (II) and/or a glyoxylic ester hemiacetal (III).

where:.

R", R"₁, R"₂: alkyl, aryl

25

4. The aminotriazine condensation product as claimed in at least one of the preceding claims, characterized in that

the oxocarboxylic acid derivative is a glyoxylic methyl ester methyl hemiacetal (GMHA; methyl 2-hydroxy-2-methoxyacetate) (IV).

- 5. The aminotriazine condensation product as claimed in at least one of the preceding claims, characterized in that the condensation product is soluble both in organic solvents and also in water.
- 6. The aminotriazine condensation product as claimed in at least one of the preceding claims, characterized in that besides at least one oxocarboxylic acid derivative (II, III, IV), also formaldehyde and/or urea are present in the reaction mixture.

- 7. The aminotriazine condensation product as claimed in at least one of the preceding claims, characterized in that the reaction proceeds in a solvent, in particular water, or an organic solvent.
- 20 8. The aminotriazine condensation product as claimed in at least one of the preceding claims, characterized in that the reaction proceeds in methanolic solution.
- The use of aminotriazine condensation products, in particular melamine condensation products, as claimed in at least one of the preceding claims, characterized by the preparation of resins, adhesives, hardeners, coatings, chromatography materials, organic synthesis building blocks, coating additive crosslinkers and materials with flame-resistant properties and knits.
- 10. A method for the production of aminotriazine condensation products as claimed in at least one

of claims 1 to 8, characterized in that an aminotriazine, in particular melamine, is mixed in a liquid phase with at least one oxocarboxylic acid derivative.

5

- 11. The method as claimed in claim 10,
 characterized in that, after the condensation, a
 transformation of the -COOR group takes place, in
 particular a transetherification,
 transesterification and/or amidation.
- 12. The method as claimed in claim 10 or 11, characterized in that the condensation product is cured by heating.

15

20

10

13. The method as claimed in at least one of the preceding claims, characterized in that the condensation product is incorporated into other polymers through reaction with the ester functionality.

Abstract

The invention relates to an aminotriazine condensation product, in particular a melamine condensation product, which is prepared by reacting an aminotriazine, in particular melamine, with an oxocarboxylic acid derivative. Furthermore, the invention relates both to the use and also to a method for preparing this aminotriazine condensation product.

10

As a result, a formaldehyde-free or low-formaldehyde and thus better compatible aminotriazine condensation product in terms of health is provided, the reaction of which can be easily controlled.